

「プロセスインテグレーションによる機能発現ナノシステムの創製」
平成 21 年度採択研究代表者

H23 年度 実績報告

染谷隆夫

東京大学工学系研究科 教授

大面積ナノシステムのインタフェース応用

§1. 研究実施体制

(1)「染谷隆夫」グループ

①研究代表者: 染谷 隆夫 (東京大学工学系研究科、教授)

②研究項目

大面積デバイス技術の開発

(2)「桜井 貴康」グループ

①主たる共同研究者: 桜井 貴康 (東京大学生産技術研究所、教授)

②研究項目

大面積集積回路設計

§ 2. 研究実施内容

2-1 大面積デバイス技術の開発

自己組織化ナノ機能の研究項目については、自己組織化単分子膜を用いた低電圧駆動有機トランジスタおよび有機メモリの作製技術の確立と素子構造の最適化を行ってきた。特に、自己組織化膜を形成する前処理プロセスとして酸素プラズマを用いるが、このプラズマ条件が自己組織化膜の均一性、絶縁性に大きな影響を与えることが先行研究より分かっていた。初年度に、高真空プラズマ装置を導入することで、真空度、プラズマパワー、ガス流量をパラメータとして、有機半導体、絶縁体に及ぼす影響を詳細に調べ、有機トランジスタの高性能化への道筋をつけた。H22年度は、ナノレベルの構造体を高精度に評価する技術を確認してきた。上記、プロセスの最適化および構造評価技術を基盤として作製したトランジスタが移動度 $1 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 、オン/オフ比 10^6 を示し、2Vで駆動する優れた有機トランジスタを実現することができた。更に、これを用いた低電圧駆動できる高性能有機 SRAM を実現できた。電気的特性のみならず、機械的特性においてもブレイクスルーを達成した。特に、基板のプラスチックフィルムに前駆体を利用し平坦化を計ることで、曲率半径が $0.1\text{-}0.3\text{mm}$ と極めて曲げに強い有機 CMOS 集積回路を実現し、まったく新しいエレクトロニクスの姿を示した。一連の成果は、材料分野で世界的に権威のある Nature Materials 誌の Article および表紙に取り上げられ話題を呼んだ。本年度は、この最適化された自己組織化ナノ構造の成膜プロセスを用いて、低電圧駆動高性能有機トランジスタ、有機メモリの作製技術の確立と評価手法の構築を行った。それと同時に、得られたデータを元に、大面積トランジスタマトリックス、フラッシュ型メモリマトリックス、またフレキシブルデバイスの制御回路として有機アナログ回路(整流回路、負電圧発生回路)、有機デジタル論理回路(クロック発生回路、カウンター回路)の試作を行い、フレキシブルデバイスを動作させた。

ナノ印刷の研究項目については、初年度に、アトリットルインクジェットを用いて有機半導体上に数ミクロンの微細電極を形成して、電流-電圧特性を詳細に調べた。これにより、自己組織化単分子膜を透過してくるトンネル電流を評価し、メモリ性能との相関を明らかにすることができた。特に、インクの選定に重点を置き取り組むことで、インク吐出電圧を精度よく制御することができ、有機半導体上に1-2ミクロンの電極を安定して描画できる基盤技術を整えることができた。平成22年度は、アトリットルインクジェット技術を用いてトランジスタを用いた基本集積回路である発振機(リングオシレータ)を作製したところ、40Vの駆動電圧に対して 2.26kHz と非常に速い周波数応答を持つトランジスタ回路を実現した。更にゲート絶縁膜に自己組織化単分子膜を用いることで、2Vまでの低電圧化を実現し、低電圧駆動としては世界最高速の 43kHz を実現し有機トランジスタ回路の新しい応用を示すことができた。本年度は、このアトリットルインクジェットを用いて電極の更なる微細化を行い、インク吐出量や電圧を制御することで、有機・金属界面の特性の改善を行ってきた。さらに、大面積デバイスの作製が可能なスクリーン印刷を導入し、高導電率、高伸縮率といった特殊な機能を有するナノ材料のパターニングおよびインクプロセス条件を最適化し、大面積デバイスへの礎を築いた。

2-2 大面積フレキシブルディスプレイ向けフローティングゲート構造をもつ有機トランジスタを駆動回路に用いた有機 LED ピクセル回路のばらつき補正回路

AMOLED (Active Matrices Organic Light Emitting Diode) はその画質の良さと視野角の広さから、一方有機トランジスタは可撓性と印刷技術を用いた低コストから、大型フレキシブルディスプレイのピクセル駆動回路への応用が期待されている。しかしながら、実際に大面積のフレキシブルフィルム上に、印刷技術を用いて多数の有機トランジスタを均質に形成するのは非常に困難であった。

本研究では、図 1-1 に示すように、フローティングゲート付き有機トランジスタ (FG-OTFT) を駆動回路に用いた AMOLED ピクセル回路について提案し、その動作を初めて実証した。電気的なフィードバックにて FG-OTFT の V_{TH} を調整し、有機トランジスタのばらつきと OLED の発光効率の低下を補正する。毎フレーム V_{TH} を電圧プログラミング又は電流プログラミングする必要がある方式とは異なり、調整された FG-OTFT の V_{TH} は数十時間の保持が可能で、そのリテンション時間以内であれば更なる V_{TH} 調整は不要である。従来手法より以下の利点を有する 1) 毎フレームの V_{TH} 補正削減で低消費電力、2) トランジスタばらつきと OLED の発光効率低下を補正可能、3) 少ない部品点数 (トランジスタ 3 個、キャパシタ 1 個) で構成され、開口部 (ピクセル当たりの画素面積) を高率化。

本研究では、厚さ $13\mu\text{m}$ のプラスチックフィルム上に AMOLED ピクセル回路を形成し、有機トランジスタの駆動電流ばらつきと OLED の発光効率の低下を補正するために、フローティングゲート付き有機トランジスタを用いた回路の動作を初めて実証した。図 1-2 に提案する FG-OTFT を用いたピクセル回路の写真を示す。FG-OTFT に高電圧パルスを印加してしきい値 (V_{TH}) をプログラミングすることにより、空間的ばらつきを 14% から 5% 以下に低減できた。リフレッシュレート 120Hz の XGA ディスプレイにおいて、既存の電圧プログラミング方式と比較し消費電力を 85% 削減しうることを示した。

2-3 ピエゾ圧電素子と 2V 有機トランジスタ回路を用いた靴底内蔵型万歩計

エナジーハーベスティングは、環境エネルギーを電気エネルギーに変換してワイヤレスセンサノードや携帯機器に電力供給することを可能にする。フレキシブルな太陽電池やピエゾ圧電フィルムと制御回路を用いることで、フレキシブルな大面積エレクトロニクスへの給電を目指す。その実現の第一歩として、ピエゾ圧電素子と 2V 有機トランジスタ回路を用いた靴底内蔵型万歩計を提案した。

最も大きな課題は、有機 PMOS トランジスタのみで構成された回路の低電源電圧における安定化であった。微弱なエナジーハーベスタ素子の出力電力を、NMOS の移動度より一桁程度高い PMOS トランジスタのみで構成される有機トランジスタ回路を用い、ノイズマージンの改善を行った。チャージポンプ式の負電圧生成回路を用いて Pseudo-CMOS インバータを負電圧でバイアスしている。使用する 2V PMOS トランジスタはゲート酸化膜に self-aligned monolayer (SAM) 技術を用い、半導体材料には DNTT を用いた。13)

図 2-1 に作製した靴底内蔵型万歩計の写真を示す(総トランジスタ数 462 個、サイズ $22 \times 7 \text{ cm}^2$)。靴底型シート上に、圧電素子として 21 本のロール状の polyvinylidenedifluoride (PVDF) フィルムが並べられ、足踏みによってロールの形状が変形することで電圧パルスを生じる。これを有機トランジスタで構成した全波整流回路で整流して万歩計回路の電源として用いる。また、この電圧パルス数を有機回路によってカウントすることで歩数を測ることができる。図 2-2 はブロックダイアグラムである。PMOS トランジスタによる全波整流回路はハーベスタ出力を整流し、約 2V の直流電圧を各回路ブロックに供給する。パルスシェーピング回路はハーベスタ出力をシュミットトリガインバータで整形して矩形波に近づけた上で、負電圧生成回路と 14 ビットステップカウンタに供給する。負電圧生成回路ではチャージポンプ回路によって約 2V の V_{DD} から約 -2V の V_{SS} を生成して、カウンタ回路の Pseudo-CMOS インバータをバイアスする。17)

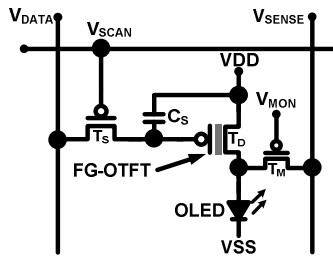


Figure 1-1: Proposed AMOLED 3T-1C pixel-circuit.

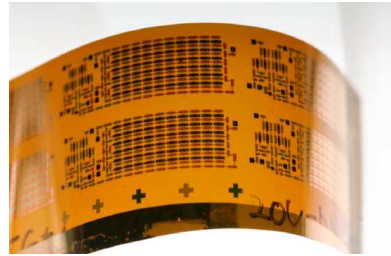


Figure 1-2: Photo of the FG-OTFT-driven AMOLED pixels. The pixel size is 20.8 mm x 6.6 mm and substrate thickness is 13 μm .

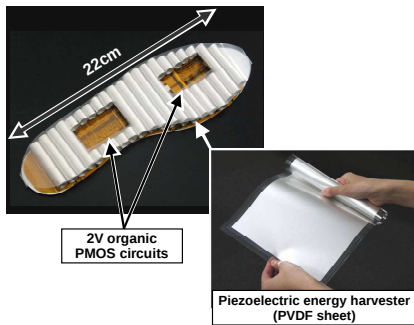


Figure 2-1: Prototype of the organic insole pedometer with piezoelectric energy harvester and 2V digital and analog

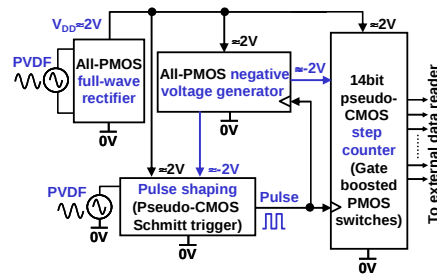


Figure 2-2: System block diagram of the organic insole pedometer..

§3. 成果発表等

(3-1) 原著論文発表

● 論文詳細情報

1. Koichi Ishida, Tsung-Ching Huang, Kentaro Honda, Tsuyoshi Sekitani, Hiroyoshi Nakajima, Hiroki Maeda, Makoto Takamiya, Takao Someya, and Takayasu Sakurai, “A 100-V AC Energy Meter Integrating 20-V Organic CMOS Digital and Analog Circuits With a Floating Gate for Process Variation Compensation and a 100-V Organic pMOS Rectifier”, *Journal of Solid-State Circuits*, Vol.47, No.1, pp. 301-309, Jan. 2012. (DOI: 10.1109/JSSC.2011.2170634).
2. F. Ante, D. Kälblein, T. Zaki, U. Zschieschang, K. Takimiya, M. Ikeda, T. Sekitani, T. Someya, J. N. Burghartz, K. Kern, H. Klauk, “Contact Resistance and Megahertz Operation of Aggressively Scaled Organic Transistors”, *Small*, vol. 8, no. 1, pp. 73-79, January (2012).
3. Ikue Hirata, Ute Zschieschang, Frederik Ante, Tomoyuki Yokota, Kazunori Kuribara, Tatsuya Yamamoto, Kazuo Takimiya, Masaaki Ikeda, Hirokazu Kuwabara, Hagen Klauk, Tsuyoshi Sekitani and Takao Someya, “Spatial control of the threshold voltage of low-voltage organic transistors by microcontact printing of alkyl- and fluoroalkyl-phosphonic acids”, *MRS Communications*, Vol. 1, pp.33-36, August 2011 (2011).
4. Tsuyoshi Sekitani and Takao Someya, “Human-friendly organic integrated circuits”, *Material Today*, Vol. 14, pp398-407, September 2011 (2011).
5. U. Zschieschang, F. Ante, D. Kälblein, T. Yamamoto, K. Takimiya, H. Kuwabara, M. Ikeda, T. Sekitani, T. Someya, J. Blochwitz-Nimoth, H. Klauk, “Dinaphtho [2,3-b:2',3'-f] thieno [3,2-b] thiophene (DNTT) thin-film transistors with improved performance and stability”, *Organic Electronics* Vol. 12, no. 8, pp. 1370-1375, June 2011 (2011).
6. Kenjiro Fukuda, Tsuyoshi Sekitani, Ute Zschieschang, Hagen Klauk, Kazunori Kuribara, Tomoyuki Yokota, Takushi Sugino, Kinji Asaka, Masaaki Ikeda, Hirokazu Kuwabara, Tatsuya Yamamoto, Kazuo Takimiya, Takanori Fukushima, Takuzo Aida, Makoto Takamiya, Takayasu Sakurai, Takao Someya, “A 4 V operation,

flexible Braille display using organic transistors, carbon nanotube actuators, and organic SRAM”, *Advanced Functional Materials*, Vol. 21, pp. 4019-4027, sep. 2011 (2011).

7. Kenjiro Fukuda, Tsuyoshi Sekitani, Tomoyuki Yokota, Kazunori Kuribara, Tsung-Ching Huang, Takayasu Sakurai, Ute Zschieschang, Hagen Klauk, Masaaki Ikeda, Hirokazu Kuwabara, Tatsuya Yamamoto, Kazuo Takimiya, Kwang-Ting Cheng, and Takao Someya, “Organic Pseudo-CMOS Circuits for Low Voltage, Large Gain, High-Speed Operation”, *IEEE Electron Device Letters*, Vol. 32, pp. 1448-1450, aug. 2011 (2011).

8. Tomoyuki Yokota, Tsuyoshi Sekitani, Yu Kato, Kazunori Kuribara, Ute Zschieschang, Hagen Klauk, Tatsuya Yamamoto, Kazuo Takimiya, Hirokazu Kuwabara, Masaaki Ikeda, and Takao Someya, “Low-voltage organic transistor with subfemtoliter inkjet source-drain contacts”, *MRS Communications*, Vol.1 pp.3-6, June 2011(2011).

9. Wen Liu, Juin J. Liou, Kazunori Kuribara, Kenjiro Fukuda, Tsuyoshi Sekitani, Takao Someya, and Zhixin Wang, “Study of organic thin-film transistors under electrostatic discharge stresses”, *IEEE Electron Device Letters*, Vol. 32, No.7, pp. 967-969, July 2011 (2011).

10. Tomoyuki Yokota, Takashi Nakagawa, Tsuyoshi Sekitani, Yoshiaki Noguchi, Kenjiro Fukuda, Ute Zschieschang, Hagen Klauk, Ken Takeuchi, Makoto Takamiya, Takayasu Sakurai, and Takao Someya, “Control of threshold voltage in low-voltage organic complementary inverter circuits with floating gate structure”, *Applied Physics Letters*, Vol. 98, 193302, May 2011, (2011).

11. Frederik Ante, Daniel Kalblein, Ute Zschieschang, Tobias W. Canzler, Ansgar Werner, Kazuo Takimiya, Masaaki Ikeda, Tsuyoshi Sekitani, Takao Someya, and Hagen Klauk, “Contact doping and ultrathin gate dielectrics for nanoscale organic thin-film transistors”, *Small* Vol. 7, pp1186-1191, May 2011 (2011).

12. Yi Li, Qi Liu, XiZhang Wang, Tsuyoshi Sekitani, Takao Someya and Zheng Hu, "Pentacene thin film transistor with low threshold voltage and high mobility by inserting a thin metal phthalocyanines interlayer ", *SCIENCE CHINA Technological Sciences*, Volume 53 / 2010 - Volume 55 / 2012, December 29, 2011, (DOI)

10.1007/s11431-011-4693-5

13. Ute Zschieschang, Myeong Jin Kang, Kazuo Takimiya, Tsuyoshi Sekitani, Takao Someya, Tobias W. Canzler, Ansgar Werner, Jan Blochwitz-Nimoth and Hagen Klauka, "Flexible low-voltage organic thin-film transistors and circuits based on C10-DNTT", *Journal of Materials Chemistry*, *J. Mater. Chem.*, 2012, 22, 4273, DOI: 10.1039/c1jm14917b, 14th, November 2011